This Page Is Inserted by IFW Operations and is not a part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning documents will not correct images, please do not report the images to the Image Problem Mailbox.

1 ATENT COOPERATION TREALY

<i>N</i>	From the INTERNATIONAL BUREAU
₩ PCT	То:
NOTIFICATION OF ELECTION (PCT Rule 61.2)	Assistant Commissioner for Patents United States Patent and Trademark Office Box PCT Washington, D.C.20231 ÉTATS-UNIS D'AMÉRIQUE
Date of mailing (day/month/year) 26 November 1999 (26.11.99)	in its capacity as elected Office
International application No. PCT/EP99/01537	Applicant's or agent's file reference Le A 32 873-PC
International filing date (day/month/year) 10 March 1999 (10.03.99)	Priority date (day/month/year) 18 March 1998 (18.03.98)
Applicant LINDE, Günter et al	
1. The designated Office is hereby notified of its election made X in the demand filed with the International Preliminary 28 September in a notice effecting later election filed with the International Preliminary 28 September The election X was was not was not made before the expiration of 19 months from the priority derived as 2.2(b).	Examining Authority on: 1999 (28.09.99) ational Bureau on:
	. *

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland

Facsimile No.: (41-22) 740.14.35

Authorized officer

Jean-Marie McAdams

Telephone No.: (41-22) 338.83.38

PCT

ANTRAG

Der Unterzeichnete beantragt, daß die vorliegende internationale Anmeldung nach dem Vertrag über die internationale Zusammenarbeit auf dem Gebiet des Patentwesens behandelt wird.

Vom Anmeldean	nt auszufüllen —————
Internationales Aktenzeichen	NEUAHMELDUHG
Internationales Anmeldedatum	1 2.63.99
	A Commonwealth of the Commonwealth
Name des Anmeldeamts und "PCT	International Application"

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts (falls gewünscht) (max. 12 Zeichen) Le A 32 873-PC PR BEZEICHNUNG DER ERFINDUNG Feld Nr. I Rußgranulate Feld Nr. II ANMELDER Name und Anschrist: (Familienname, Vorname: bei juristischen Personen vollständige amiliche Bezeichnung. Bei der Anschrist sind die Postleitzahl und der Name des Staats anzugeben. Der in diesem Feld in der Anschrist angegebene Staat ist der Staat des Sitzes oder Wohnsitzes des Anmelders sofern nachstehend kein Staat des Sitzes oder Wohnsitzes angegeben ist.) Diese Person ist nachstehend kein gleichzeitig Erfinder Telefonnr.: BAYER AKTIENGESELLSCHAFT 0214 30 71166 51368 Leverkusen DE 0214 30 34 82 Femschreibnr.: 85 101-265byd Sitz oder Wohnsitz (Staat): Staatsangehörigkeit (Staat): DE DE Diese Person ist Anmelder alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme der Vereinigten Staaten von Amerika alle Bestimnur die Vereinigten Staaten von Amerika die im Zusatzfeld für folgende Staaten: mungsstaaten angegebenen Staaten Feld Nr. III WEITERE ANMELDER UND/ODER (WEITERE) ERFINDER Name und Anschrift: (Familienname, Vorname; bei juristischen Personen vollständige amtliche Bezeichnung. Bei der Anschrift sind die Postleitzahl und der Name des Staats anzugeben. Der in diesem Feld in der Anschrift angegebene Staat ist der Staat des Sitzes oder Wohnsitzes des Anmelders, sofern nachstehend kein Staat des Sitzes oder Wohnsitzes angegeben ist.) Diese Person ist: nur Anmelder Linde, Günter Anmelder und Erfinder Deswatinesstr. 95 D 47800 Krefeld nur Erfinder (Wird dieses Kästchen angekreuzt, so sind die nachstehenden DE Angaben nicht nötig.) Sitz oder Wohnsitz (Staat): Staatsangehörigkeit (Staat): DΕ DΕ Diese Person ist Anmelder alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme der Vereinigten Staaten von Amerika alle Bestimnur die Vereinigten die im Zusatzfeld für folgende Staaten: angegebenen Staaten mungsstaaten Staaten von Amerika Weitere Anmelder und/oder (weitere) Erfinder sind auf einem Fortsetzungsblatt angegeben. Feld Nr. IV ANWALT ODER GEMEINSAMER VERTRETER; ODER ZUSTELLANSCHRIFT Die folgende Person wird hiermit bestellt/ist bestellt worden, um für den (die) Anmelder gemeinsamer Anwalt vor den zuständigen internationalen Behörden in folgender Eigenschaft zu handeln als: Vertreter (Familienname, Vorname; bei juristischen Personen vollständige amtliche Bezeichnung. Bei der Anschrift sind die Postleitzahl und der Name des Staats anzugeben.) Name und Anschrift: Telefonnr.: 0214 30 71166 Telefaxor.: BAYER AKTIENGESELLSCHAFT 0214 30 34 82 51368 Leverkusen, DE Fernschreibnr.: 85 101-265byd Zustellanschrift: Dieses Kästchen ist anzukreuzen, wenn kein Anwalt oder gemeinsamer Vertreter bestellt ist und statt dessen im obigen Feld eine spezielle Zustellanschrift angegeben ist.

Blatt Nr. . . 2. . . .

Fortsetzung von Feld Nr. III WEITERE ANMELDER UNI	D/ODER (WEITERE) ERFINDER
Wird keines der folgenden Felder benutzt, so sollt	te dieses Blatt dem Ant	trag nicht beigefügt werden.
Name und Anschrift: (Familienname, Vorname; bei juristischen Personen vollst Bei der Anschrift sind die Postleitzahl und der Name des Staats anzugeben. Anschrift angegebene Staat ist der Staat des Sitzes oder Wohnsitzes des Anmelo Staat des Sitzes oder Wohnsitzes angegeben ist.) Hempelmann, Uwe Kaarster Str. 124 D 40670 Meerbusch DE	Der in diesem Feld in d	Be
Staatsangehörigkeit (Staat): DE	Sitz oder Wohnsitz (DE	Staat):
Diese Person ist Anmelder alle Bestimmungsst für folgende Staaten: alle Bestimmungsstaaten der Vereinigten Sta	taaten mit Ausnahme laten von Amerika	X nur die Vereinigten die im Zusatzfeld staaten von Amerika angegebenen Staaten
Name und Anschrift: (Familienname, Vorname; bei juristischen Personen volls. Bei der Anschrift sind die Postleitzahl und der Kame des Staats anzugeben. Anschrift angegebene Staat ist der Staat des Sitzes oder Wohnsitzes des Anmel Staat des Sitzes oder Wohnsitzes angegeben ist.) Eitel, Manfred von Behringstr. 77 D 47906 Kempen DE	Der in diesem Feld in a	der Diaga Parson ist
Stuatsangehörigkeit (Staat):	Sitz oder Wohnsitz	(Staat):
	DE staaten mit Ausnahme aaten von Amerika	Nur die Vereinigten die im Zusatzfeld Staaten von Amerika angegebenen Staaten
Name und Anschrist: (Familienname, Vorname; bei juristischen Personen voll Bei der Anschrist sind die Postleitzahl und der Name des Staats anzugeber Anschrist angegebene Staat ist der Staat des Sitzes oder Wohnsitzes des Anme Staat des Sitzes oder Wohnsitzes angegeben ist.)	n. Der in diesem Feld in	der Diaca Parson ist:
Staatsangehörigkeit (Staat):	Sitz oder Wohnsitz	(Staat):
Diese Person ist Anmelder alle Bestimmungs für folgende Staaten: alle Bestimmungsstaaten alle Bestimmungs	staaten mit Ausnahme taaten von Amerika	nur die Vereinigten die im Zusatzfeld staaten von Amerika angegebenen Staaten
Name und Anschrift (Familienname, Vorname; bei juristischen Personen voll Bei der Anschrift sind die Postleitzahl und der Name des Staats anzugebei Anschrift angegebene Staat ist der Staat des Sitzes oder Wohnsitzes des Anm Staat des Sitzes oder Wohnsitzes angegeben ist.)	n. Der in diesem Feld in	der Diese Person ist:
Staatsangehörigkeit (Staat):	Sitz oder Wohnsitz	z (Staat):
	sstuaten mit Ausnuhme Stuaten von Amerika	nur die Vereinigten die im Zusatzfeld Staaten von Amerika angegebenen Staaten
Weitere Anmelder und/oder (weitere) Erfinder sind auf e	rinem zusätzlichen For	rtsetzungsblatt angegeben.

}		Blatt Nr.	3					
Feld N	r. V	BESTIMMUNG VON STAATEN		_				
Dic folge	nden B	estimmungen nach Regel 4.9 Absatz a werden hiermit vorgenor	amen (bitte di	e entsprechenden Käsichen antreuzen; wenigstens ein Käsichen			
muß ange	ekreust	werden):						
Region	AP A	atent ARIPO-Patent: GH Ghana, GM Gambia, KE I UG Uganda, ZW Simbabwe und jeder weitere Staat	Cenia, L. der '	LS I	esotho, MW Malawi, SD Sudan, SZ Swasiland,			
Ø	EA	Eurasisches Patent: AM Armenien, AZ Aserbaidschan, BY Belarus, KG Kirgisistan, KZ Kasachstan, MD Republik Moldau, RU Russische Föderation, TJ Tadschikistan, TM Turkmenistan und jeder weitere Staat, der Vertragsstaat des Eurasischen Patentübereinkommens und des PCT ist						
Ø	EP	Europäisches Patent: AT Österreich, BE Bel DE Deutschland, DK Dänemark, ES Spanien, Fl Finnl	gien, and, F L Nic	R Frac derlan	und LI Schweiz und Liechtenstein, CY Zypern, akreich, GB Vereinigtes Königreich, GR Griechenland, de, PT Portugal, SE Schweden und jeder weitere Staat, des PCT ist			
· 🖾	OA	OAPI-Patent: BF Burkina Faso, BJ Benin, CF CM Kamerun, GA Gabun, GN Guinea, GW Guin TD Tschad, TG Togo und jeder weitere Staat, der V	Zenti ea-Bis ertrags	ralafri' sau, N sstaat (kanische Republik, CG Kongo, Cl Côte d'Ivoire, IL Mali, MR Mauretanien, NE Niger, SN Senegal, der OAPI und des PCT ist Ifalls eine andere Schutzrechtsart ingeben			
Nation	ales F	Patent Ifalls eine andere Schutzrechtsart oder ein sonstiges Ve	rfahren	gewün	scht wird, bitte auf der gepunkteten Linie angeben):			
Ø		Albanien	\boxtimes		Lesotho			
\boxtimes	AM	Armenien	\boxtimes		Litauen			
\boxtimes	ΑT	Österreich	\boxtimes	LU	Luxemburg			
\boxtimes	AU	Australien	\boxtimes	LV	Lettland			
\boxtimes	ΑZ	Aserbaidschan	\boxtimes		Republik Moldau			
83	BA	Bosnien-Herzegowina	Ø		Madagaskar			
Ø	BB	Barbados	\boxtimes	MK	Die ehemalige jugoslawische Republik			
\boxtimes	BG	Bulgarien	~		Mazedonien			
Ø	BR	Brasilien	1 23		Mongolei			
⊠	BY.		\boxtimes		Malawi			
1 23		Kanada	\boxtimes		Mexiko			
⊠ ⊠		und L1 Schweiz und Liechtenstein	<u>8</u>		Norwegen			
⊠		China	X		Neuseeland			
		Kuba			Polen			
⊠		Tschechische Republik	(Z) (∑)		Ponugal			
K		Dänemark	(<u>X</u>)		Rumänien			
⊠		Estland	⊠ ⊠	SD	Russische Föderation			
	ES	Spanien	<u>⊠</u>	SE	Schweden			
\boxtimes	FI	Finaland	×	SG	Singapur			
Z		Vereinigtes Königreich	\mathbf{x}	SI	Slowenien			
i ⊠		Grenada		SK	Słowakei			
i ⊠		Georgien	[X]		Sierra Leone			
		Ghana	123	TJ	Tadschikistan			
		Gambia	⊠		Turkmenistan			
⊠		Kroatien	123		Türkei			
X	HU		×		Trinidad und Tobago			
123	10	Indonesien	123		Ukraine			
Ø	IL	Israel	[2]		Uganda			
×	18	Indien	1 23					
	IS	Island	~	CJ	Vereinigte Staaten von Amerika			
	JP	Japan	\boxtimes	117	Usbekistan			
	KE		K 3		Vietnam			
l ⊠	KC		8					
123	KP				Jugoslawien Simbabwe			
"	•••	·····						
	KR	Republik Korea	na:	ionale	für die Bestimmung von Staaten (für die Zwecke eines n Patents), die dem PCT nach der Veröffentlichung			
		Kasachstan	die	ses Fo	ormblaus beigetreten sind: d alle diejenigen Länder, die			
1 2		Saint Lucia	ED.	บก	o alle diejenigen Länder, die			
1 28		C Sri Lanka	LXI.		· Anmeldetag · dem · P.CT · beigetrete			
		C. Liberia	닏		n.d			
1								
1 1/4	201 4.	7 Ausail o auch alle anderen nach dem PC I zillassi	የድቤ ዘ	estimi	n genannten Bestimmungen nimmt der Anmelder nach nungen vor mit Ausnahme der im Zusatzfeld genannten Ider erklärt, daß diese zusätzlichen Bestimmungen unter			

Regel 4.9 Absatz b auch alle anderen nach dem PCT zulässigen Bestimmungen vor mit Ausnahme der im Zusatzseld genannten Bestimmungen, die von dieser Erklärung ausgenommen sind. Der Anmelder erklärt, daß diese zusätzlichen Bestimmungen unter dem Vorbehalt einer Bestätigung stehen und jede zusätzliche Bestimmung, die vor Ablauf von 15 Monaten ab dem Prioritätsdatum nicht bestätigt wurde, nach Ablauf dieser Frist als vom Anmelder zurückgenommen gilt. (Die Bestätigung einer Bestimmung erfolgt durch die Einreichung einer Mitteilung, in der diese Bestimmung angegeben wird, und die Zahlung der Bestimmungs- und der Bestätigungsgebühr. Die Bestätigung muß beim Anmeldeamt innerhalb der Frist von 15 Monaten eingehen.)

			В	latt Nr	ə ———				
Feld Nr. VI PRIORITÄTS.	ANSPRUC	Н	···		Wei	tere Prioritätsa	nsprüche sinc	l im Zusat	zfeld angegeben.
Anmeldedatum	Akte der früher	nzeicher					here Anmeldu	ng eine:	
der früheren Anmeldung (Tag/Monal/Jahr)	der fruner	en Anmo	elaung		Anmeldur Staat		Anmeldung:* nales Amt		onale Anmeldung: nmeldeamt
Zeile (1) (18.3.98) 18. März 1998	19811	553.9	9	DE			01	PE	
Zeile (2)							- / U.	1	
							SEP 1	4 2000	<u>(</u>
Zeile (3)			٠	•••			FEAT & TRA	DEMARK OF	7
Das Anmeldeamt wird erst	icht, eine bes	glaubigte	Abschri	ft der oben i	n der (den)	Zeile(n)			
bezeichneten früheren Ann dem Amt eingereicht word	neldune(en)	zu erstell	len und e	dem internat	ionalen Bü	ro zu übermitte	In (nur falls di	e frühere 1	Anmeldung(en) bei
• Falls es sich bei der früheren A Mitgliedstaat der Pariser Verband	nmeldune um	eine ARI	IPO Anno	ddung handel	so muß	in dom Zucar-fal	d mindretme ai		egeben werden, der Ingereicht wurde.
Feld Nr. VII INTERNATI									
Wahl der internationalen Recherc (fulls zwei oder mehr als zwei int behörden für die Ausführung der in zuständig sind, geben Sie die von Iht der Zweibuchstaben-Code kann ben	ernationale l iternationaler nen gewählte i	Recherche L Recherch	he bea	iere Recherc	he <i>(falls ein</i> on ihr durch	e frühere Recher geführt worden i	che bei der inte.	rnationalen	ugnahme auf diese Recherchenbehörde ler regionales Amt)
ISA /									
Feld Nr. VIII KONTROLL	ISTE; EI:	REICH	TUNGS	SPRACHE	Ξ				
Diese internationale Anmeldur	ng enthält			·		gen die nachs	tehend angeki	reuzten Ur	iterlagen bei:
die folgende Anzahl von Blät	tern:			die Gebühr					
Antrag : Beschreibung (ohne	_			rte unterzeio					
Sequenzprotokollteil) :	10	3. 🔲 K	Copie de	r allgemein	en Vollma	acht: Aktenze	ichen (falls vo	orhanden):	
Ansprüche :	3	_	• -	_		ner Unterschri	ft		
Zusammenfassung :	1			ibeleg(e), ii Zeilennum		VI durch nnzeichnet:			
Zeichnungen :			-		-	en Anmeldung	in die folgen	de Sprach	e:
Sequenzprotokollteil der Beschreibung :							_	•	logischen Material
		° — -							
Blattzahl insgesamt :	19	9. 🛭 S	Sonstige	(einzeln au	fführen):	rucksch	riftent ungsau 1	estel	lung
Abhildung der Zeichnungen, di mit der Zusammenfassung veröffentlicht werden soll (Nr.):	ie		Sp	rache, in de ernationale ngereicht wir	r die Anmeldung		10119350-1	. 	
Feld Nr. IX UNTERSCHI									
Der Name jeder unterzeichnene aus dem Antrag ergibt, in wel	ten Person i Icher Eigens	ist neben schaft die	der Un e Perso	terschrift zu unterzeich	wiederhol inet.	en, und es ist	anzugeben, soj	fern sich d	les nicht eindeutig
BAYER AKTIENG	ESELLS	CHAF	T	า		Weite s. B]		rigt	
Dr. Gaiser		<i>\</i>	V.5	D2.1			!v	ill follo	w
Dr. Gaiser		Dr	. Eck	ert					
		 -	- Vom	Anmeldear	nt auszufi	illen			1
Datum des tatsächlichen internationalen Anmeldun	g:								2. Zeichnungen einge-
3. Geändertes Eingangsdatur fristgerecht eingegangene zur Vervollständigung die	r Unterlage.	n oder 2	⁷ eichnu	างอก					gangen:
Datum des fristgerechten E Richtigstellungen nach Ar	ingangs der	angelor							nicht ein- gegangen:
5. Internationale Recherchen (falls zwei oder mehr zust			ISA/		6.	Übermittlun Zahlung der	g des Rechero Rechercheng	henexemp ebühr auf	olars bis zur geschoben
		V	om Inte	rnationaler	Büro aus	zufüllen			
Datum des Eingangs des A beim Internationalen Büro:	ktenexemp	lars							

VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEI GEBIET DES PATENTWESENS RECUD 15 MAY 2000

PCT

EC'D 1 3 MAY 2001

WIPO

PCT

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

(Artikel 36 und Regel 70 PCT)

			(Militar Co and	1.090		• /	
Aktenzeiche Le A 32 8		Anmelders oder Anwalts PC PB	WEITERES VORGI	EHEN		lung über die Übersendung de Prüfungsbericht (Formblatt P	
Internationa	des A	ktenzeichen	Internationales Anmelde	datum(Tag	/Monat/Jahr)	Prioritätsdatum (Tag/Monat	(Tag)
PCT/EP9	9/01	537	10/03/1999			18/03/1998	
Internationa C09C1/6		tentklassification (IPK) oder i	l nationale Klassifikation und	IPK			
Anmelder							
BAYER A	KTII	ENGESELLSCHAFT e	t al.			4400-00-00-00-00-00-00-00-00-00-00-00-00	
		rnationale vorläufige Prürstellt und wird dem Anm				onale vorläufigen Prüfung	beauftragte
2. Diese	r BEF	RICHT umfaßt insgesamt	4 Blätter einschließlich	n dieses [Deckblatts.		
u B	nd/od ehörd	ler Zeichnungen, die geä	ndert wurden und diese chtigungen (siehe Rege	em Berich	t zugrunde	tter mit Beschreibungen, / liegen, und/oder Blätter m t 607 der Verwaltungsrich	it vor dieser
3. Diese	_	icht enthält Angaben zu f					
		Grundlage des Berichts Priorität	,				
"			Gutachtons über Neube	sit orfinde	vicebo Tätid	rkoit und goworbliche Any	vondbarkeit
'''		MangeInde Einheitlichk		an, emmoe	ensche rau	gkeit und gewerbliche Anv	vendbarkeit
v	×	•	g nach Artikel 35(2) hin			der erfinderische Tätigke ung dieser Feststellung	it und der
VI		Bestimmte angeführte U	Jnterlagen				
VII		Bestimmte Mängel der i	internationalen Anmeld	ung			
VIII	×	Bestimmte Bemerkunge	en zur internationalen A	nmeldung	9		
Datum der f	Einreid	chung des Antrags	-	Datum de	er Fertigstellu	ng dieses Berichts	
28/09/19	99			11.05.20	00		
	Euro D-80 Tel.	nschrift der mit der internation gten Behörde: päisches Patentamt 0298 München +49 89 2399 - 0 Tx: 523656		Bevollmä Grundk	chtigter Bedi	ensteter	
1	rax:	+49 89 2399 - 4465		Tal No .	40 80 2200 8	ECA	-3990.50

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

Internationales Aktenzeichen PCT/EP99/01537

. G	run	dlage	e des	Beri	ichts
-----	-----	-------	-------	------	-------

1. Dieser Bericht wurde erstellt auf der Grundlage (Frsatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach

•		14 hin vorgeleg eigefügt, weil si	t wurden, gelt	en im l	Rahmen dies	-				
	Beschi	reibung, Seiter	ո։							
	1-10		ursprüngliche	e Fass	ung					
	Patenta	ansprüche, Nr.	.:							
	1-19		ursprüngliche	e Fass	ung					
2.	Aufgrur	nd der Änderun	gen sind folge	nde Uı	nterlagen fort	gefallen:				
	☐ Be	schreibung,	Seiten:							
	□ An	sprüche,	Nr.:							
	□ Ze	ichnungen,	Blatt:							
	an ein	eser Bericht ist ogegebenen Grüngereichten Fas egereichten Fas e zusätzliche Be	inden nach Au sung hinausg	ıffassu	ng der Behör	de über				
₹.	Liwaige		amerkungen.							
V.		ndete Feststell blichen Anwen							keit un	d der
1.	Festste	llung	. •							
	Neuhei	t (N)		Ja: Nein:	Ansprüche Ansprüche	1-19				
	Erfinde	rische Tätigkeit	(ET)	Ja: Nein:	Ansprüche Ansprüche	none				
	Gewert	oliche Anwendb	arkeit (GA)	Ja: Nein:	Ansprüche Ansprüche	1-19				
2	Lintorio	an und Eddin	ın aan							

2. Unterlagen und Erklärungen

siehe Beiblatt

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

Internationales Aktenzeichen PCT/EP99/01537

VIII. Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

Zur Klarheit der Patentansprüche, der Beschreibung und der Zeichnungen oder zu der Frage, ob die Ansprüche in vollem Umfang durch die Beschreibung gestützt werden, ist folgendes zu bemerken:

siehe Beiblatt

Punkt V:

Es wird auf die folgenden Dokumente verwiesen:

- D1 EP 0 802 241 A
- D2 EP 0 807 669 A
- D3 EP 0 860 476 A
- D4 EP 0 857 764 A

Gegenüber D1 sieht die Annmelderin nach der Beschreibungseinleitung (Seite 2, Zeilen 14, 15) den Unterschied der relativen Farbstärke. Diese Betrachtungsweise scheint jedoch zu eng zu sein, da verfahrensmäßig die gleichen Maßnahmen zur Produktherstellung in D1 angewendet werden. Selbst wenn D1 in den Beispielen punktuell diesen Wert nennt, scheint die Lehre von D1 nicht auf diesen Wert begrenzt zu sein. Somit erscheinen die Gegenstände der Ansprüche nicht mehr neu zu sein. Auch gegenüber D2 sind zumindest, was die Gegenstände der unabhängigen Ansprüche angeht, keine Unterschiede erkennbar.

D3 und D4 sind lediglich zu Ihrer Information genannt, da sie, falls die Priorität zu Recht beansprucht wurde (was hier gegenwärtig nicht überprüft werden kann, da noch kein Prioritätsbeleg vorliegt) nur unter dem Gesichtspunkt einer älteren Anmeldung, somit der Neuheit, in Frage kommen können.

Punkt VIII:

Das Kennzeichen von Anspruch 1 beschreibt keine klare Verfahrensmaßnahme, sondern eher das Ergebnis einer nicht angegebenen Verfahrensmaßnahme.

PCT

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

(Artikel 18 sowie Regeln 43 und 44 PCT)

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts Le A 32 873-PC	WEITERES VORGEHEN	siehe Mitteilung über d Recherchenberichts (F zutreffend, nachstehen	ie Übermittlung des internationalen ormblatt PCT/ISA/220) sowie, soweit ider Punkt 5
Internationales Aktenzeichen	Internationales Anmeld	ledatum	(Frühestes) Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr)
//	(Tag/Monat/Jahr)	000	18/03/1998
PCT/EP 99/01537	10/03/19	999	18/03/1998
Anmelder			
BAYER AKTIENGESELLSCHAFT e	t al.		
Dieser internationale Recherchenbericht wurd Artikel 18 übermittelt. Eine Kopie wird dem In	de von der Internationaler ternationalen Büro übern	n Recherchenbehörde e nittelt.	rstellt und wird dem Anmelder gemäß
Dieser internationale Recherchenbericht umfa X Darüber hinaus liegt ihm jet	aßt insgesamt <u>3</u> weils eine Kopie der in die	Blätter. esem Bericht genannten	Unterlagen zum Stand der Technik bei.
Grundlage des Berichts			
 a. Hinsichtlich der Sprache ist die inte durchgeführt worden, in der sie eine 	ernationale Recherche au gereicht wurde, sofern un	f der Grundlage der inte ter diesem Punkt nichts	rnationalen Anmeldung in der Sprache anderes angegeben ist.
Die internationale Recherch Anmeldung (Regel 23.1 b))	ne ist auf der Grundlage e durchgeführt worden.	einer bei der Behörde eil	ngereichten Übersetzung der internationalen
Recherche auf der Grundlage des S	Sequenzprotokolis durchç	geführt worden, das	Aminosäuresequenz ist die internationale
in der internationalen Anme	-		paraicht worden ist
zusammen mit der internati			igereicht worden ist.
bei der Behörde nachträglic		-	ict
bei der Behörde nachträglic			oll nicht über den Offenbarungsgehalt der
internationalen Anmeldung	im Anmeldezeitpunkt hin	ausgeht, wurde vorgele	gt.
Die Erklärung, daß die in α wurde vorgelegt.	omputerlesbarer Form en	faßten Informationen de	m schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen,
2. Bestimmte Ansprüche ha			iehe Feld I).
3. MangeInde Einheitlichkei	t der Erfindung (siehe F	eld II).	
Hinsichtlich der Bezeichnung der Erfli	ndung		
X wird der vom Anmelder ein	gereichte Wortlaut geneh	ımigt.	
wurde der Wortlaut von der	r Behörde wie folgt festge	esetzt:	
Hinsichtlich der Zusammenfassung			
wird der vom Anmelder ein	gereichte Wortlaut geneh	nmigt.	
wurde der Wortlaut nach R	legel 38.2b) in der in Feld le innerhalb eines Monats	IIII angegebenen Fassu	ing von der Behörde festgesetzt. Der Absendung dieses internationalen
6. Folgende Abbildung der Zeichnungen	ist mit der Zusammenfas	ssung zu veröffentlichen	: Abb. Nr
. wie vom Anmelder vorgesc	chlagen		keine der Abb.
weil der Anmelder selbst k	eine Abbildung vorgeschl	agen hat.	•
weil diese Abbildung die E	rfindung besser kennzeic	hnet.	

a. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES IPK 6 C09C1/60 C09C1/58

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

IPK 6 CO9C

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

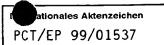
Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

Kategorie°	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	EP 0 802 241 A (BAYER AG) 22. Oktober 1997 in der Anmeldung erwähnt siehe das ganze Dokument	1-19
X	EP 0 807 669 A (DEGUSSA) 19. November 1997 in der Anmeldung erwähnt siehe Seite 2, Zeile 5 - Zeile 59; Ansprüche 1-3; Tabelle 2 siehe Seite 3, Zeile 2 - Zeile 46 siehe Seite 4, Zeile 19 - Zeile 56	1,3-5,7, 14,15
P , X	EP 0 860 476 A (BAYER AG) 26. August 1998 siehe das ganze Dokument/	1,3-7, 10,11

Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen	X Siehe Anhang Patentfamilie
° Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen	"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum
"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist	oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden
"E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen	Theorie angegeben ist
Anmeldedatum veröffentlicht worden ist "L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer	"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer T\u00e4tigkeit beruhend betrachtet werden
anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt) "O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht "P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach	kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist
dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist	"&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist
Datum des Abschlusses der internationalen Recherche	Absendedatum des internationalen Recherchenberichts
5. Juli 1999	12/07/1999
'Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde	Bevollmächtigter Bediensteter
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016	Siebel, E

3





ategorie°	ung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht komme	enden Teile	Betr. Anspruch Nr.
-			
Ρ, Χ	EP 0 857 764 A (BAYER AG) 12. August 1998		1,3-7, 12-15, 17,18
	siehe Seite 3, Zeile 10 - Zeile 55; Ansprüche 1-12 		. ,
4	EP 0 370 490 A (MITSUBISHI CHEM IND) 30. Mai 1990		1,7
	siehe Seite 2, Zeile 14 - Seite 3, Zeile 2; Ansprüche 1,4; Tabelle 2 		
	•		
	-		
	·		

3

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

ational Application No
PCT/EP 99/01537

Patent docum cited in search		Publication date		Patent family member(s)	Publication date
EP 080224	1 A	22-10-1997	DE	19638042 A	23-10-1997
LI 000224		22 10 1557	AU	1784597 A	23-10-1997
			AU	1784697 A	23-10-1997
			CA	2202705 A	18-10-1997
			CA	2202706 A	18-10-1997
			CN	1167786 A	17-12-1997
			CN	1168396 A	24-12-1997
			DE	19649756 A	23-10-1997
			EP	0802242 A	22-10-1997
			JP	10060302 A	03-03-1998
			JP	10060302 A	03-03-1998
			US	5797988 A	25-08-1998
			. 03 		
EP 080766	69 A	19-11-1997	DE	4336548 A	19-05-1994
			DE	4345168 A	03-11-1994
			EP	0598318 A	25-05-1994
			JP	6296851 A	25-10-1994
			US	5480626 A	02-01-1996
EP 086047	'6 A	26-08-1998	 DE	19706899 C	05-11-1998
LI 000047	<i>N</i>	20 00 1330	AU	5467698 A	27-08-1998
			CA	2229972 A	21-08-1998
			CN	1199758 A	25-11-1998
			JP	10237351 A	08-09-1998
			NZ	329787 A	28-01-1999
EP 085776	 64 A	12-08-1998	DE	19704943 A	13-08-1998
FL 002//0	, A	17-00-1330	AU	5294498 A	13-08-1998
			CA	2229086 A	10-08-1998
			CN	1195006 A	07-10-1998
			JP	10231367 A	02-09-1998
			NZ	329710 A	29-06-1999
EP 037049	0 A	30-05-1990	JP	2142858 A	31-05-1990
			JP	2674602 B	12-11-1997
			DE	68912728 D	10-03-1994
			DE	68912728 T	25-08-1994
			KR	9701930 B	19-02-1997
			US	5547498 A	20-08-1996

PCT

WELTORGANISATION FÜR GEISTIGES EIGENTUM Internationales Büro

INTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)

(51) Internationale Patentklassifikation ⁶:

(11) Internationale Veröffentlichungsnummer:

WO 99/47609

C09C 1/60, 1/58

A1 (43) Internationales

Veröffentlichungsdatum:

23. September 1999 (23.09.99)

(21) Internationales Aktenzeichen:

PCT/EP99/01537

(22) Internationales Anmeldedatum:

10. März 1999 (10.03.99)

(30) Prioritätsdaten:

198 11 553.9

18. März 1998 (18.03.98)

DE

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US): BAYER AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE]; D-51368 Leverkusen (DE).

(72) Erfinder; und

(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): LINDE, Günter [DE/DE]; Deswatinesstrasse 95, D-47800 Krefeld (DE). HEMPELMANN, Uwe [DE/DE]; Kaarster Strasse 124, D-40670 Meerbusch (DE). EITEL, Manfred [DE/DE]; Von-Behring-Strasse 77, D-47906 Kempen (DE).

(74) Gemeinsamer Vertreter: BAYER AKTIENGE-SELLSCHAFT; D-51368 Leverkusen (DE). (81) Bestimmungsstaaten: AE, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CA, CH, CN, CU, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MD, MG, MK, MN, MW, MX, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZW, ARIPO Patent (GH, GM, KE, LS, MW, SD, SL, SZ, UG, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

Veröffentlicht

Mit internationalem Recherchenbericht.

Vor Ablauf der für Änderungen der Ansprüche zugelassenen Frist; Veröffentlichung wird wiederholt falls Änderungen eintreffen.

(54) Title: SOOT GRANULES

(54) Bezeichnung: RUSSGRANULATE

(57) Abstract

The invention relates to soot granules obtained by compacting soot powder in the presence of additives. Despite compaction said granules surprisingly have a greater colouring power than the powders from which they are made.

(57) Zusammenfassung

Die Erfindung betrifft durch Kompaktierung von Rußpulver in Gegenwart von Hilfsmitteln erhaltene Rußgranulate, die trotz Kompaktierung überraschenderweise eine höhere Farbstärke als die zugrundeliegenden Pulver aufweisen.

LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

AL	Albanien	ES	Spanien	LS	Lesotho	SI	Slowenien
AM	Armenien	FI	Finnland	LT	Litauen	SK	Slowakei
ΑT	Österreich	FR	Frankreich	LU	Luxemburg	SN	Senegal
AU	Australien	GA	Gabun	LV	Lettland	SZ	Swasiland
ΑZ	Aserbaidschan	GB	Vereinigtes Königreich	MC	Monaco	TD	Tschad
BA	Bosnien-Herzegowina	GE	Georgien	MD	Republik Moldau	TG	Togo
BB	Barbados	GH	Ghana	MG	Madagaskar	TJ	Tadschikistan
BE	Belgien	GN	Guinea	MK	Die ehemalige jugoslawische	TM	Turkmenistan
BF	Burkina Faso	GR	Griechenland		Republik Mazedonien	TR	Türkei
BG	Bulgarien	HU	Ungarn	ML	Mali	TT	Trinidad und Tobago
BJ	Benin	IE	Irland	MN	Mongolei	UA	Ukraine
BR	Brasilien	IL	Israel	MR	Mauretanien	UG	Uganda
BY	Belarus	IS	Island	MW	Malawi	US	Vereinigte Staaten von
CA	Kanada	IT	Italien	MX	Mexiko		Amerika
CF	Zentralafrikanische Republik	JP	Japan	NE	Niger	UZ	Usbekistan
CG	Kongo	KE	Kenia	NL	Niederlande	VN	Vietnam
CH	Schweiz	KG	Kirgisistan	NO	Norwegen	YU	Jugoslawien
CI	Côte d'Ivoire	KP	Demokratische Volksrepublik	NZ	Neuseeland	zw	Zimbabwe
CM	Kamerun		Korea	PL	Polen		
CN	China	KR	Republik Korea	PT	Portugal		
CU	Kuba	KZ	Kasachstan	RO	Rumānien		
CZ	Tschechische Republik	LC	St. Lucia	RU	Russische Föderation		
DE	Deutschland	LI	Liechtenstein	SD	Sudan		•
DK	Dänemark	LK	Sri Lanka	SE	Schweden		
EE	Estland	LR	Liberia	SG	Singapur		

WO 99/47609 PCT/EP99/01537

Rußgranulate

Diese Erfindung betrifft ein Verfahren zur Herstellung von kompaktierten Rußgranulaten für verschiedene Einsatzgebiete.

5

10

15

Es ist bekannt, daß färbende Materialien aufgrund ihrer geringen Teilchengröße von 0,01 µm bis 20 µm stark zum Stauben neigen und sich wegen der starken Haftkräfte der Partikel sehr schlecht dosieren lassen. Dem begegnet man dadurch, daß diese Pulver vor ihrer Verwendung granuliert werden. Allerdings geht dabei auch ein Teil der Dispergierbarkeit verloren, da die Granulate üblicherweise zur Verbesserung der Transporteigenschaften durch Bindemittel in ihrer Stabilität verstärkt werden. Dadurch bedingt weisen Granulate aus Pigmenten häufig eine geringere Anfangsfarbstärke auf, bei gegebener Dispergierzeit bleibt also die Farbstärkentwicklung vom Granulat hinter der Einfärbung mit Pulver zurück. Die erwünschten Vorteile der Staubfreiheit und der guten Dosierbarkeit haben daher zu vielen Bemühungen geführt, auch bei Pigmenten zu gut dispergierbaren Granulaten zu kommen.

20

Das gilt insbesondere auch für Ruße, die wegen ihrer geringen Teilchengröße und niedrigen Schüttdichte immer schon als Trockenpulver eine Verdichtung durch "Entgasen" zwischen Vakuumwalzen oder durch "Verperlung" in rotierenden Trommeln erfahren haben. Allerdings entstehen bei der Verdichtung zwischen Walzen keine Granulate und bei einer Trockenverpulverung agglomerieren die Rußflocken zu unterschiedlich großen Kügelchen bis zu einigen Millimetern Durchmesser. Bei der Naß-Verperlung werden die Ruße unter Verwendung von Wasser und eventuell Bindemitteln in Perlmaschinen aufgranuliert und danach getrocknet. Die Herstellung von Rußgranulaten wird beschrieben in Ullmanns "Enzyclopedia of Industrial Chemistry", Fifth Edition, Volume A 5 S. 148.

30

25

US-A-4 946 505 beschreibt die Herstellung von Ruß- und Pigment-Granulaten zur Beton-Einfärbung, die durch Sprühgranulation hergestellt werden. Nachteilig bei der Sprühgranulation ist, daß der Ruß mit Wasser angemaischt werden muß und wegen

der Wasserverdampfung erhebliche Trocknungskosten entstehen. Preß- und Brikettierverfahren werden in US-A-4 946 505 explizit ausgeschlossen.

DE-A-4 336 548 und DE-A-4 345 168 beschreiben Rußgranulate, die unter Zusatz beträchtlicher Wassermengen über eine Ringmatrizenpresse, nachfolgende Rundung und Trocknung hergestellt werden. Dabei werden Granulate mit weniger als 1% Bindemittel erhalten.

5

EP-A-0 370 490 beschreibt Ruß-Schuppen für Druckfarben, die beim Kompaktieren von Ruß unter niedrigem Preßdruck entstehen. Das Material enthält zum Teil noch staubende Anteile. Es wird ausgeführt, daß bei hohem Preßdruck die Dispergierbarkeit leidet.

Aus der EP-A-0 802 241 sind Rußgranulate bekannt geworden, die eine relative Farbstärke bezogen auf das zugrundeliegende Pulver von maximal 100 % aufweisen.

Die bisher vorliegenden Verfahren liefern ein noch nicht zufriedenstellendes Material oder sind wegen der Nachtrocknung energetisch ungünstig.

- Es lag also die Aufgabe vor, Rußgranulate zur Verfügung zu stellen, die mechanische Stabilität mit hoher Farbstärke verbinden sowie ein technisch einfaches, kostengünstiges Verfahren vorzustellen, das derart gut dispergierbare, transportstabile und staubarme Ruß-Granulate liefert.
- Diese Aufgabe wird durch die erfindungsgemäßen Rußgranulate gelöst: Das Rußpulver wird unter Zusatz von Hilfsmitteln so stark kompaktiert und nachfolgend granuliert, daß der Quotient aus pyknometrischer Dichte und Schüttdichte zwischen 3,0 und 10, vorzugsweise zwischen 3,5 und 8, liegt. Die so erhaltenen Granulate weisen trotz Kompaktierung überraschenderweise eine höhere Farbstärke als die zugrundeliegenden Pulver auf.

Gegenstand der Erfindung ist daher auch ein Verfahren zur Herstellung von Rußgranulaten, in dem Ruße mit Hilfsmitteln kompaktiert werden, in einer bevorzugten Ausführungsform zweifach oder mehrfach, und zu Granulaten zerkleinert werden, wobei die Granulate in der Regel eine mittlere Teilchengröße von 0,3 bis 2 mm, vorzugsweise von 0,5 bis 1,0 mm, aufweisen. Der Quotient aus pyknometrischer Dichte und Schüttdichte des erhaltenen erfindungsgemäßen Granulats liegt zwischen 3,0 und 10, vorzugsweise zwischen 3,5 und 8.

In den Kompaktierschritten wurden vorzugsweise Preßkräfte zwischen 1 und 100 kN/cm, insbesondere bevorzugt zwischen 10 und 30 kN/cm angewendet. Die Preßkräfte können in allen Kompaktierschritten gleich hoch sein, sind aber vorzugsweise verschieden. Die mit diesen Verdichtungsaggregaten erzielbare Schülpendicke beträgt vorzugsweise 1 bis 5 mm, insbesondere 1 bis 3 mm. Als Verdichtungsaggregate eignen sich zum Kompaktieren auch beispielsweise Schnecken, Walzen, Stempelpressen, Strangpressen mit oder ohne Entlüftungsvorrichtungen.

Die nach den Kompaktierschritten erfolgende Granulation findet vorzugsweise als Siebgranulation statt. Dabei kann der Feinanteil unmittelbar durch Siebung abgetrennt und zurückgeführt werden.

20

30

5

10

15

Es kann auch vorteilhaft sein, den Feinanteil durch einen nachfolgenden Schritt, vorzugsweise durch z.B. Nachrollen auf einem Drehteller oder in einer Drehtrommel aufzugranulieren.

Die Zugabe von flüssigen Hilfsmitteln erhöht bei gegebenen Kompaktierbedingungen den Durchsatz und den Preßdruck so, daß die entstehenden Granulate fester werden.

Messungen der Teilchengrößenverteilung zeigen, daß unter Anwendung von höher werdenden Preßkräften offensichtlich die Strukturen der Ruße zerbrechen. Dementsprechend wird auch beobachtet, daß die erfindungsgemäß hergestellten Granulate

eine höhere Farbstärke aufweisen als die entsprechenden Pulvermischungen. Die Anwendung höherer Drücke und/oder Mehrfachkompaktierung bringt höhere Granulat-Stabilität und erfindungsgemäß überraschenderweise gleichzeitig höhere Farbstärke.

- Die Teilchengrößen der Granulate sind nicht erfindungswesentlich, sie betragen in der Regel von 0,3 bis 2 mm, bevorzugt von 0,5 bis 1,0 mm. Der Quotient aus pyknometrischer Dichte und Schüttdichte liegt zwischen 3,0 und 10, bevorzugt zwischen 3,5 und 8.
- Als Hilfsstoff werden ein oder mehrere Bindemittel und/oder Dispergiermittel eingesetzt. Die Hilfsstoffe können fest oder flüssig sein. Vorzugsweise eingesetzt werden flüssige Bindemittel aus der Gruppe Polyole, Polyether, Polyester, Öle, Wasser und wäßrige Lösungen von polymeren Salze oder Melasse. Ebenfalls bevorzugt ist ein Dispergiermittel aus der Gruppe Ligninsulfonate und NaphthalinformaldehydKondensate.
 - Die Gesamtmenge der Hilfsmittel beträgt üblicherweise 0,1 Gew.-% bis 25 Gew.-%, vorzugsweise 1 bis 20 Gew.-% und besonders bevorzugt 3 bis 15 Gew.-%.
- Die erhaltenen Granulate können anschließend zur Erhöhung der Stabilität in einem weiteren Schritt mit einer dünnen Schicht eines Materials aus der Gruppe der Wachse, Polyether, Polyester, Polyolefine und Polyvinylalkohole überzogen werden. Es können zusätzlich Konservierungs- und/oder Duftstoffe zugesetzt werden.
- Nach dem erfindungsgemäßen Verfahren werden nicht nur gut fließfähige Granulate erhalten, sondern die relative Farbstärke in Beton ist höher als aufgrund der Menge des eingesetzten Ausgangsmaterials in Pulverform zu erwarten.
- Daher eignen sich die erfindungsgemäßen Rußgranulate besonders zum Einfärben von Substraten, insbesondere von Beton, Asphalt, Kunststoffen sowie Farben und Lacken.

Methode zur Überprüfung der Dispergierbarkeit von Granulaten in Baustoffen

Die Dispergierbarkeit in Zementmörtel (Farbstärke in Mörtelprismen) der jeweiligen Granulate wird im Vergleich zum Pulver-Standard bestimmt.

5

Arbeitsgeräte:

Toni-Mischgerät mit Regelelektronik

Mischbehälter (Fa. Toni-Technik)

Farbmeßgerät (Minolta CR 310); Lichtart C; 0° diffus mit Glanz, 8 cm

10

Beleuchtungsöffnung

Mörtelrezeptur:

1200 g Quarzsand 0,2 - 1 mm

15

600 g Quarzsand 1 - 2 mm

200 g Kalksteinmehl (5 Gew.-% Siebrückstand auf 90 μm-Sieb)

500 g Weißzement (Dyckerhoff)

175 g Wasser (WZ-Wert= 0,35)

6 g Pigment-Granulat

20

25

30

Durchführung:

Alle Mischkomponenten werden zunächst ohne Wasser in den Mischbehälter vorgelegt und trocken vorgemischt. Anschließend werden Wasser und danach Zement eingegeben und die Mischung 100 Sekunden gerührt.

Diese Mischung wird in eine Stahlpreßform eingebracht und mit ca. 300 bar verpreßt. Direkt nach dem Preßvorgang wird noch in der Form der feuchte Preßling durch Aufsetzen des Farbmeßgerätes farbmetrisch vermessen. Die Messung erfolgt an vier Stellen des Preßlings.

Auswertung:

Die oben beschriebene Arbeitsweise wird sowohl an dem Granulat-Prüfling als auch an dem dazugehörigen Pulver-Standard als Bezug durchgeführt.

5

10

15

20

25

30

Die Bestimmung der relativen Farbstärke der Proben mit dem Farbstärkekriterium Y erfolgt nach DIN 55986/A.

Die Teilchengröße wurde an Granulaten mit Hilfe eines Malvern® Mastersizer S bestimmt.

Messung der Teilchengröße mit dem Malvern Mastersizer S

Bei der Dispergierung der untersuchten Substanzen sind zwei verschiedene Verfahren eingesetzt worden, die sich in Bezug auf die Intensität des Dispergierprozesses unterscheiden. Eine hohe Dispergierenergie wird durch den Einsatz einer Ultraschallsonotrode mit 200 W Eingangsleistung erreicht. Verwendet wurde eine Ultraschallsonotrode der Firma B. Braun Diessel Biotec vom Typ ®Labsonic U. In Mischung mit der angegebenen Menge Dispergier- und Zusatzstoffe werden 500 mg des Materials pro 50 ml destilliertem Wasser 2 Minuten mit der Ultraschallsonotrode dispergiert. Verwendet wird eine Einstellung mit 200 W Eingangsleistung, wobei der Impulsregler der Sonotrode auf 0,5 gestellt wird. Man benutzt Gefäße in Becherform mit einem Durchmesser von ca. 45 mm und einer Höhe von 55 mm. Die Sonotrode taucht ca. 2 cm in die Suspension ein, wobei auf möglichst gleichmäßigen Abstand von den Wänden des Gefäßes geachtet wird. Die Suspension wird vollständig in die Meßkammer des Gerätes gegeben und während der Messung mit jeweils 50 % der maximalen Leistung gerührt und gepumpt. Eine Alternative, um geringe Dispergier-Energien zu realisieren, ist die Verwendung der internen Ultraschallkammer des Meßgerätes. Hier werden 50 mg der Untersuchungssubstanz gegebenenfalls auch zusammen mit den angegebenen Zusatzstoffen in die mit destillierten Wasser gefüllte Ultraschallkammer des Gerätes gegeben. Die Intensität der Ultraschalleistung wird

auf 70 % eingestellt; die Dispergierdauer beträgt 2 Minuten; die übrigen Einstellungen gelten unverändert. Angegeben werden der Mittelwert der Volumenverteilung (D[4,3]) und/oder die Perzentilwerte der Volumenverteilung bei 10, 50 und 90 % (D[v,0.1], D[v,0.5] und D[v,0.9]).

5

Siebanalyse mit Luftstrahlsiebmaschine

Arbeitsgeräte:

250 µm DIN-VA-Sieb (DIN-ISO 3310)

Luftstrahlsiebmaschine; Rhewum Typ LPS 200 MC

10

(4 mm Düse, 18 UpM, 35 m³/h Luft, Siebzeit 1 Minute)

Durchführung:

20 g der zu analysierenden Probe werden auf das Sieb gegeben und

anschließend mit der Siebmaschine abgesiebt.

Nach Beendigung des Siebens wird die Masse des Überkorns be-

15

stimmt und der prozentuale Anteil gegen Einwaage bestimmt.

Auslausverhalten:

20

30

Das Auslaufverhalten wird gemäß DIN 53 211 bestimmt mit einem Auslaufbecher (100 ml Volumen, 6 mm Auslaufdüse).

Nachfolgend wird die Erfindung mit Beispielen beschrieben, die keine Einschränkung bedeuten.

25 <u>Versuchsreihe 1</u>

[®]Flammruß 101 (Handelsprodukt der Degussa) wurde in einem Pflugscharmischer (Fa. Lödige, Paderborn) intensiv mit unterschiedlichen Mengen an Polyethylenglykol [®]PEG 400 (Handelsprodukt der Firma EC-Dormagen) und Ammonium-Ligninsulfonat (Handelsprodukt der Firma Lignotec, Düsseldorf) gemischt.

Diese Mischungen wurden in bis zu 3 Kompaktiervorgängen verdichtet oder auch über eine Vakuumpresse entgast und in einem Schritt kompaktiert mit einem Aggregat Typ CS25 der Firma Bepex, Leingarten.

Das Material wurde über einen Schroter der Firma Frewitt Typ MGI 314 mit einem Sieb von 1,5 mm Maschenweite geschrotet und über ein Sieb mit 323 µm Maschenweite Typ ®Conflux der Firma Siebtechnik, Mühlheim, vom Feinanteil abgetrennt. Die Versuchsbedingungen und die Ergebnisse sind in der nachfolgenden Tabelle 1 zusammengestellt. Es wurden fließfähige, nicht staubende Granulate von unregelmäßiger Form mit einer erhöhten relativen Farbstärke erhalten.

Versuchsreihe 2

Es wurden Mischungen von einem Flammruß 101 wie in Versuchsreihe 1 mit unterschiedlichen Anwendungsmengen von Hilfsmitteln hergestellt, über eine Vakuumpresse entgast und über den Kompaktor CS 25 und eine Vorverdichterschnecke mit
stärker konischem Anteil verdichtet. Die Versuchsbedingungen und die Ergebnisse
sind in Tabelle 2 zusammengestellt. Bei Verwendung von Hilfsmitteln wurden stabile Granulate mit verbesserter relativer Farbstärke erhalten.

20

15

Mit zunehmender Menge an Hilfsmitteln nehmen nach dem Preßvorgang sowohl die sich einstellende Preßkraft als auch Schüttdichte, Ausbeute, Stabilität und relative Farbstärke zu (Tabelle 2).

25 Vergleichsversuche

Bei sehr niedrigen Preßkräften bzw. ohne Hilfsmittel bleiben die Schüttdichten niedrig wobei die Ausbeute und die relative Farbstärke niedriger sind (Tabelle 2).

Tabelle 1

	Zusatz	Preßkraft	Schüttdichte	rel. Farbstärke	TGV	pykn. Dichte/	Durchsatz
		(kN/cm)	(g/cm ³)	in Beton**)	D(4,3)	Schüttdichte	(kg/h)
				(%)	шщ		
Pulver			0,18		3,90	10,1	
Granulat 1. Durch- gang	2,5 % PEG/2,5 % ALS	5	0,25	93	•	7,1	43
Granulat 2. Durch- gang	2,5 % PEG/2,5 % ALS	18	0,34	117	0,78	5,4	75
Granulat 3. Durch- gang	2,5 % PEG/2,5 % ALS	24	0,40	126	99,0	4,6	92
Granulat 1. Durch- gang	10 % PEG/2,5 % ALS	6	0,33	113	•	5,5	53
Granulat 2. Durch- gang	10 % PEG/2,5 % ALS	25	0,46	125	0,73	4,0	132
Granulat*	10 % PEG/2,5 % ALS	23	0,49	123	0,76	3,7	68
Granulat*	10 % PEG/5 % ALS	23	0,46	123	0,73	4,0	82

* vorher Entgasung über ®Vacupress **gen

PEG = Polyethylenglykol

^{**}gemessen gegen die Pulvermischung ALS = Ammoniumligninsulfonat

Tabelle 2

سامم امسلمما ــــــ شده		Preßkraft Durchsatz (I) CS 25 (kN/cm) (kg/h) 20 143 16 133	Durchsatz CS 25 (kg/h) 143 133	Preßkraft Durchsatz (1) CS 25 (kN/cm) (kg/h) (20 143 16 133 84
		6	3 9	2 % PEG/1 % ALS 3 9
ca. 10** 0,25		3	0 3	ohne Zusatz 0 3

** Produkt lief sehr unregelmäßig

(1) = max. Preßkraft (nach Vacupress) bei 1 Durchgang

(2) = sensorischer Test, Werte von 0 - 5 (0 = weich, 5 = hart)

Patentansprüche

 Verfahren zur Herstellung von Rußgranulaten, in dem Ruße in Gegenwart von Hilfsmitteln kompaktiert und zu Granulaten zerkleinert werden, wobei die Granulate eine mittlere Teilchengröße von 0,3 bis 2 mm, vorzugsweise von 0,5 bis 1,0 mm, aufweisen, dadurch gekennzeichnet, daß der Quotient aus Dichte und Schüttdichte zwischen 3,0 und 10 mm, vorzugsweise zwischen 3,5 und 8 mm, liegt.

10

5

- 2. Verfahren gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die Kompaktierung zweifach oder mehrfach durchgeführt wird.
- 3. Verfahren nach Ansprüchen 1 und 2, dadurch gekennzeichnet, daß als Hilfsmittel ein oder mehrere Bindemittel und/oder Dispergiermittel in einer Gesamtmenge von 0,1 bis 25 Gew.-%, vorzugsweise 1 bis 20 Gew.-%, insbesondere von 3 bis 15 Gew.-% eingesetzt werden.
- Verfahren nach Ansprüchen 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß ein flüssiges
 Bindemittel aus der Gruppe Polyole, Polyether, Polyester, Öle, Wasser und wäßrige Lösungen von polymeren Salzen oder Melasse eingesetzt wird.
 - Verfahren nach Ansprüchen 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß ein Dispergiermittel aus der Gruppe Ligninsulfonate und Naphthalinformaldehyd-Kondensate eingesetzt wird.
 - Verfahren nach Ansprüchen 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, daß Preßkräfte zwischen 1 und 100 kN/cm, vorzugsweise zwischen 5 und 50 kN/cm, insbesondere zwischen 10 und 30 kN/cm angewendet werden.

25

- 7. Verfahren nach Ansprüchen 1 bis 6, dadurch gekennzeichnet, daß Verdichtungsaggregate in Form von Schnecken, Walzen, Stempelpressen oder Strangpressen eingesetzt werden.
- 8. Verfahren nach Ansprüchen 1 bis 7, dadurch gekennzeichnet, daß die Kompaktierung in mehreren Kompaktierschritten bei jeweils unterschiedlichen Preßkräften erfolgt.
- Verfahren nach Anspruch 8, dadurch gekennzeichnet, daß es sich um zwei
 Kompaktierschritte handelt.
 - 10. Verfahren nach Ansprüchen 1 bis 9, dadurch gekennzeichnet, daß als Folgeschritt eine Siebung durchgeführt wird.
- 11. Verfahren nach Ansprüchen 1 bis 10, dadurch gekennzeichnet, daß die abgetrennte Siebfraktionen aufgranuliert wird.

20

- 12. Verfahren nach Ansprüchen 1 bis 11, dadurch gekennzeichnet, daß die erhaltenen Granulate mit einer dünnen Schicht eines Materials aus der Gruppe Wachse, Polyether, Polyolefine und Polyvinylalkohole überzogen werden.
- 13. Verfahren nach Ansprüchen 1 bis 12, dadurch gekennzeichnet, daß zusätzlich Konservierungsstoffe und/oder Duftstoffe zugesetzt werden.
- 25 14. Kompaktierte Rußgranulate mit einer relativen Farbstärke, bezogen auf das zugrundeliegende Pulver, von größer 100%.
- 15. Rußgranulate gemäß Anspruch 14, dadurch gekennzeichnet, daß sie eine mittlere Teilchengröße von 0,3 bis 2 mm, vorzugsweise von 0,5 bis 1,0 mm, aufweisen, und daß der Quotient aus Dichte und Schüttdichte zwischen 3,0 und 10 mm, vorzugsweise zwischen 3,5 und 8 mm, liegt.

WO 99/47609 PCT/EP99/01537

- 16. Rußgranulate gemäß Ansprüchen 14 und 15, dadurch gekennzeichnet, daß sie durch zweifach oder mehrfach durchgeführte Kompaktierung erhalten werden.
- 17. Rußgranulate gemäß Ansprüchen 14 bis 16, dadurch gekennzeichnet, daß sie als Hilfsmittel ein oder mehrere Bindemittel und/oder Dispergiermittel in einer Gesamtmenge von 0,1 bis 25 Gew.-%, vorzugsweise 1 bis 20 Gew.-%, insbesondere von 3 bis 15 Gew.-% enthalten.
- 18. Rußgranulate gemäß Anspruch 17, dadurch gekennzeichnet, daß es sich bei dem oder den Bindemittel(n) um flüssige Substanzen aus der Gruppe Polyole, Polyether, Polyester, Öle, Wasser und wäßrige Lösungen von polymeren Salzen oder Melasse handelt.
- 15 19. Rußgranulate gemäß Anspruch 17, dadurch gekennzeichnet, daß es sich bei dem Dispergiermittel um einen Stoff aus der Gruppe Ligninsulfonate und Naphthalinformaldehyd-Kondensate handelt.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

intern. al Application No

PCT/EP 99/01537 A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER IPC 6 C09C1/60 C09C1/58 According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC **B. FIELDS SEARCHED** Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) IPC 6 Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used) C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages Relevant to claim No. χ EP 0 802 241 A (BAYER AG) 22 October 1997 1 - 19cited in the application see the whole document X EP 0 807 669 A (DEGUSSA) 19 November 1997 1,3-5,7,cited in the application 14.15 see page 2, line 5 - line 59; claims 1-3; table 2 see page 3, line 2 - line 46 see page 4, line 19 - line 56 Ρ, Χ EP 0 860 476 A (BAYER AG) 26 August 1998 1,3-7,10,11 see the whole document -/--Further documents are listed in the continuation of box C. X Patent family members are listed in annex. Special categories of cited documents: "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular retevance cited to understand the principle or theory underlying the invention "E" earlier document but published on or after the international "X" document of particular relevance; the claimed invention filing date cannot be considered novel or cannot be considered to "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another involve an inventive step when the document is taken alone "Y" document of particular relevance; the claimed invention citation or other special reason (as specified) cannot be considered to involve an inventive step when the "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or document is combined with one or more other, such docunents, such combination being obvious to a person skilled document published prior to the international filing date but in the art. later than the priority date claimed "&" document member of the same patent family Date of the actual completion of the international search Date of mailing of the international search report 5 July 1999 12/07/1999 Name and mailing address of the ISA Authorized officer European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk

Siebel, E

Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Intern ial Application No PCT/EP 99/01537

/Cartin	DOCUMENTO CONCUESTA DO CONCUEST	PCT/EP 99/01537
Continu	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	
- 3-17	of the relevant passages	Relevant to claim No.
, Х	EP 0 857 764 A (BAYER AG) 12 August 1998	1,3-7, 12-15,
	see page 3, line 10 - line 55; claims 1-12	17,18
	EP 0 370 490 A (MITSUBISHI CHEM IND) 30 May 1990	1,7
	see page 2, line 14 - page 3, line 2; claims 1,4; table 2	
		
!		
		*
	•	

INTERNA FIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

Interna al Application No PCT/EP 99/01537

Patent document cited in search report		Publication		Patent family	Publication
cked in Search repor		date		member(s)	date
EP 0802241	Α	22-10-1997	DE	19638042 A	23-10-1997
			AU	1784597 A	23-10-1997
			AU	1784697 A	23-10-1997
			CA	2202705 A	18-10-1997
			CA	2202706 A	18-10-1997
			CN	1167786 A	17-12-1997
			CN	1168396 A	24-12-1997
			DE	19649756 A	23-10-1997
			EP	0802242 A	22-10-1997
			JP	10060302 A	03-03-1998
			JP	10060300 A	03-03-1998
			US	5797988 A	25-08-1998
EP 0807669	Α	19-11-1997	DE	4336548 A	19-05-1994
			DE	4345168 A	03-11-1994
			ĒP	0598318 A	25-05-1994
			JP	6296851 A	25-10-1994
			US	5480626 A	02-01-1996
EP 0860476	A	26-08-1998	DE	19706899 C	05-11-1998
			AU	5467698 A	27-08-1998
			CA	2229972 A	21-08-1998
			CN	1199758 A	25-11-1998
			JP	10237351 A	08-09-1998
			NZ	329787 A	28-01-1999
EP 0857764	Α	12-08-1998	DE	19704943 A	13-08-1998
			AU	5294498 A	13-08-1998
			CA	2229086 A	10-08-1998
			CN	1195006 A	07-10-1998
			JP	10231367 A	02-09-1998
			NZ	329710 A	29-06-1999
EP 0370490	Α	30-05-1990	JP	2142858 A	31-05-1990
			JP	2674602 B	12-11-1997
			DE	68912728 D	10-03-1994
			DE	68912728 T	25-08-1994
			KR	9701930 B	19-02-1997
			US	5547498 A	20-08-1996